

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-052228

(43)Date of publication of application : 25.02.1997

(51)Int.Cl. B29B 7/46
C08J 3/20
C08L 63/00
H01L 21/56
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 07-209479

(71)Applicant : SUMITOMO BAKELITE CO LTD

(22)Date of filing : 17.08.1995

(72)Inventor : TAKASU NOBUTAKA

(54) MANUFACTURE OF SEMICONDUCTOR SEALING EPOXY RESIN COMPOSITION**(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To extremely reduce a void occurrence rate by removing air entrainment and bubble and to be able to improve solder heat resistance by setting specific pressure reduction and temperature by using a biaxial kneading extruder of the same direction as a kneader when epoxy resin composition is thermally kneaded.

SOLUTION: (A) Epoxy resin having a melting point of 50 to 130° C and containing 70wt.% or more of crystalline epoxy having two or more epoxy groups in one molecule in total epoxy resin, (B) phenol resin curing agent having 5 poise or more of melting viscosity at 150° C, (C) curing accelerator, (D) molten silica powder of 76 to 94wt.% contained in the total resin composition, (E) epoxy resin composition indispensably containing silane coupling are thermally kneaded. In this case, the kneader of the same direction is held under the pressure reducing condition of 250mmHg or less, the temperature of the composition discharged from the extruder after kneading is the melting point or higher of the crystalline epoxy resin of the component (A), and 90 to 140° C.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 01.07.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3009027

[Date of registration] 03.12.1999

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11)特許番号

特許第3009027号
(P3009027)

(45)発行日 平成12年2月14日(2000.2.14)

(24)登録日 平成11年12月3日(1999.12.3)

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

B 2 9 B 7/46

B 2 9 B 7/46

C 0 8 J 3/20

C F C

C 0 8 J 3/20

C F C D

C 0 8 L 63/00

C 0 8 L 63/00

H 0 1 L 21/56

H 0 1 L 21/56

T

請求項の数1(全 7 頁)

(21)出願番号 特願平7-209479

(22)出願日 平成7年8月17日(1995.8.17)

(65)公開番号 特開平9-52228

(43)公開日 平成9年2月25日(1997.2.25)

審査請求日 平成10年7月1日(1998.7.1)

(73)特許権者 000002141

住友ベークライト株式会社

東京都品川区東品川2丁目5番8号

(72)発明者 高須 信孝

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住

友ベークライト株式会社内

審査官 ▲吉▼澤 英一

(56)参考文献 特開 平6-107912(JP, A)

特開 平6-226736(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)

C08J 3/00 - 3/28

B29B 7/00 - 7/94

C08L 63/00

H01L 21/56

(54)【発明の名称】 半導体封止用エポキシ樹脂組成物の製造方法

1

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A)融点が50～130℃で、かつ1分子にエポキシ基を2個以上有する結晶性エポキシを総エポキシ樹脂中に70重量%以上含むエポキシ樹脂、

(B)150℃での熔融粘度が5ポイズ以下のフェノール樹脂硬化剤、(C)硬化促進剤、(D)総樹脂組成物中に76～94重量%含まれる熔融シリカ粉末、(E)シランカップリング剤を必須成分とするエポキシ樹脂組成物を加熱混練するに際し、混練装置として同方向2軸混練押し出し機を用い、かつこの同方向2軸混練押し出し機の系内を250mmHg以下の減圧条件下に保ち、更に混練後に該同方向2軸混練押し出し機から吐出されるエポキシ樹脂組成物の温度がエポキシ樹脂組成物中の(A)成分の結晶性エポキシ樹脂の融点以上の温度であり、かつ90～140℃であることを特徴とする半導体

2

エポキシ樹脂組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は成形性、半田耐熱性、耐湿信頼性に優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】IC、LSI等の半導体素子の封止方法としてエポキシ樹脂のトランスファー成形による方法が低コスト、大量生産に適した方法として採用され、信頼性の点でもエポキシ樹脂や硬化剤であるフェノール樹脂の改良により向上が図られてきた。しかし、近年の電子機器の小型化、軽量化、高性能化の市場動向において、半導体の高集積化も年々進み、また半導体パッケージの表面実装化が促進されるなかで、半導体封止材料への要

10

求は益々厳しいものとなってきた。このため、従来からの封止材料では解決出来ない問題点も出てきている。その最大の問題点は、半導体パッケージの表面実装の採用によりパッケージが半田浸漬、あるいはリフロー工程で急激に200℃以上の高温にさらされ、このためにパッケージが割れたり、チップあるいはリードフレームと封止樹脂との界面剥離が生じて耐湿性が低下すること、即ち半田耐熱性である。この半田耐熱性の向上を目的として、エポキシ樹脂封止材料に関しては耐熱エポキシの使用、半田浸漬時の応力低減やリードフレーム、チップとの接着性向上のための可撓性樹脂の使用、接着性付与成分の添加、無機質充填材の配合量の増量、あるいはシリカへのシランカップリング剤の処理条件の改良等数多くの提案がなされてきている。

【0003】これらのうちで現在最も効果的と考えられ、広く採用されているのがエポキシおよび硬化剤成分として、成形温度での熔融粘度の低い樹脂を使用し、また硬化剤として可撓性骨格を有するフェノール樹脂を使用し、かつ組成物中の熔融シリカの含有率を高めた樹脂組成物である。この組成物によれば熔融シリカの含有率が高いために低吸湿化及び低熱膨張化が達成出来る上に、可撓性構造の硬化剤により基材との接着力が向上するため半田耐熱性が良好であり、更に低熔融粘度の樹脂の使用により成形時の熔融樹脂組成物が低粘度を保ち、流動性が高いため金型内への充填性が良好である。エポキシ樹脂としては、特に常温で固体で、熔融時の粘度が極端に低下する結晶性のエポキシ樹脂が広く使用され始められている（例えば、特開平5-175364、特開平5-343570、特開平6-80763各号公報等）。

【0004】しかしながら近年パッケージの薄型化に伴い、パッケージ中に占める半導体封止材料の厚みが一段と薄くなってきており、例えば、1mm厚のTSOPの場合など、チップの上面に形成される封止材料の厚みは、0.2~0.3mm程度となる。このために半導体封止材料中にピンホールやボイド（空洞）が存在すると耐湿信頼性、電気絶縁性が著しく低下してしまう。ピンホール・ボイドに関しては従来より、タブレット変形や流動樹脂の乱流による成形時のエアーの巻き込み、あるいはタブレット中に含まれる水分が原因として考えられてきた（例えば、特開昭61-138620、特開昭63-237910、特開昭64-61028、特開平1-129424各号公報等）。

【0005】しかし、エアーの巻き込み防止やタブレット吸湿の防止等の従来の手法では、確かにピンホール・ボイドを低減出来る効果があるにはあるが皆無とならなかった。また、水分以外の揮発分もボイドの原因として挙げられており（例えば、特開昭61-261316号公報）、このためエポキシ樹脂組成物の揮発成分を低減する方法を既に提案済みである（例えば、特願平5-2

66192、特願平6-34308各号公報）。これらで提案された樹脂組成物でのボイド低減効果は著しく高く、樹脂組物の種類によってはボイドを皆無とすることが可能となった。ところが、半田耐熱性を更に向上させるために、低粘度の樹脂、特に結晶性のエポキシ樹脂を用いて熔融シリカの含有量を増大させた樹脂組成物によっては揮発分を低減するだけでは、特に薄型パッケージで問題となる0.2mm以下のピンホール・ボイドについて十分でなく、更なる改良が必要であることが判明した。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、以上のような状況に鑑み、ボイド発生機構について更に検討を続けた結果なされたもので、エポキシ樹脂組成物を加熱混練する工程で発生する空気巻き込みや、混練時及び成形時に起こる結晶性樹脂の熔融過程で生じる気泡を樹脂組成物中から効率的に取り除くことでボイド発生率を極端に低減させ、かつ半田耐熱性に優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物の製造方法を提供することを目的としている。

【0007】

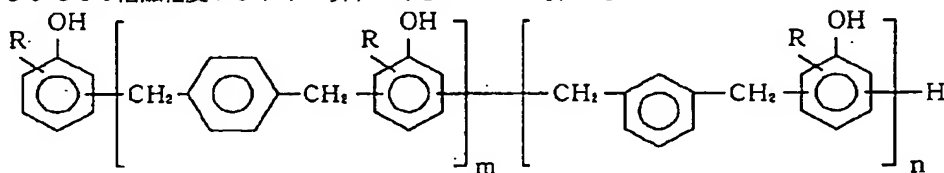
【課題を解決するための手段】本発明は、（A）融点が50~130℃で、かつ1分子にエポキシ基を2個以上有する結晶性エポキシを総エポキシ樹脂中に70重量%以上含むエポキシ樹脂、（B）150℃での熔融粘度が5ボイズ以下のフェノール樹脂硬化剤、（C）硬化促進剤、（D）総樹脂組成物中に76~94重量%含まれる熔融シリカ粉末、（E）シランカップリング剤を必須成分とするエポキシ樹脂組成物を加熱混練するに際し、混練装置として同方向2軸混練押し出し機を用い、かつこの同方向2軸混練押し出し機の系内を250mmHg以下の減圧条件下に保ち、更に混練後に該同方向2軸混練押し出し機から吐出されるエポキシ樹脂組成物の温度がエポキシ樹脂組成物中の（A）成分の結晶性エポキシ樹脂の融点以上の温度であり、かつ90~140℃であることを特徴とする半導体エポキシ樹脂組成物の製造方法である。

【0008】以下に本発明を詳細に説明する。本発明に用いられるエポキシ樹脂は、融点が50~130℃であり、かつ1分子中にエポキシ基を2個以上有する結晶性エポキシ樹脂を総エポキシ樹脂中に70重量%以上含むエポキシ樹脂である。結晶性エポキシ樹脂は、融点以下で固形であるが融点以上の温度で熔融し、極めて低粘度の液状物となるため、エポキシ樹脂組成物中の熔融シリカの含有量を多くしても成形時の熔融粘度が低く、流動性に優れ、素子の金線変形やリードフレームの変形を防止することができる。しかしながら、融点が50℃未満であるとエポキシ樹脂組成物を製造するため他の成分と混合する際に、摩擦熱等の温度上昇により熔融がはじまり、作業性が悪くなるため生産性に劣る。一方、融点が

130℃を越えるとエポキシ樹脂組成物を加熱混練する際にエポキシ樹脂を溶融するために高温が必要になり、そのため混練中に反応が進行し、成形時の流動性が低下してしまう。融点はキャピラリーガラス中の樹脂の融解を外観で判定する通常の測定方法や、またはDSCによる結晶融解時の吸熱ピークの測定などで簡単に求めることができる。

【0009】この結晶性エポキシ樹脂の例としては、3, 3', 5, 5'-テトラメチルピフェノールジグリシジルエーテル、3, 3', 5, 5'-テトラメチルビスフェノールFジグリシジルエーテル、ハイドロキノンジグリシジルエーテル、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテルジグリシジルエーテルなどが挙げられるが、これらに限定されるものではない。この結晶性エポキシ樹脂の使用量は、総エポキシ樹脂量の70重量%以上が望ましい。70重量%未満ではエポキシ樹脂の溶融粘度の低減効果が十分でなく、成形時の流動性が低下してしまう。この結晶性エポキシと併用可能なエポキシ樹脂とはエポキシ基を有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を指し、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール類のエポキシ樹脂等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、これらのエポキシ樹脂は単独でも併用しても差し支えない。

【0010】本発明の(B)成分であるフェノール樹脂硬化剤は150℃での溶融粘度が5ポイズ以下であること*



(1)

(Rは水素、アルキル基を表す)

【0012】式(1)のフェノール樹脂硬化剤のp-キシリレン構造とm-キシリレン構造の比率は特に限定されるものではなく、p-キシリレン構造、m-キシリレン構造のそれぞれ単独の樹脂であっても、あるいはそれぞれ単独の樹脂の併用であっても、または1分子中にp-キシリレン構造とm-キシリレン構造とが共存していてもなら差し支えない。150℃での溶融粘度が5ポイズ以下とするためには、m+nの値は1から10までで、かつこれらの混合物である。

【0013】(C)成分の硬化促進剤としては、前記エポキシ樹脂とフェノール樹脂硬化剤との架橋反応の触媒となるものであり、具体的には1, 8-ジアザビシクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7等のアミジン系化合物、

*とを特徴とする。溶融粘度が150℃で5ポイズを越えると、得られるエポキシ樹脂組成物の溶融粘度が上昇するために成形時の流動性が低下し、金型内の成形品の未充填や金線変形、リードフレーム変形(いわゆるパッドシフト)が発生する。フェノール樹脂の150℃での溶融粘度の測定方法としては、ICI粘度計が簡便であり、かつ一般的である。(B)成分のフェノール樹脂硬化剤としては、エポキシ樹脂と硬化反応を行い架橋構造を形成することができるフェノール性水酸基を有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を指し、具体的には、フェノールノボラック樹脂、キシリレン変性フェノール樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂、ビスフェノールA、トリフェノールメタンなどが例示されるが、これらに限定されるものではない。これらのフェノール樹脂硬化剤も単独でも併用しても差し支えない。半田耐熱性の点から特に効果のあるフェノール樹脂硬化剤としては、特に式(1)で示されるp-もしくはm-キシリレン構造で変性されたフェノール樹脂であり、通常はフェノールとp-キシリレングリコールジメチルエーテル、或いはm-キシリレングリコールジメチルエーテルとの重縮合反応により合成される。この構造のフェノール樹脂は通常のフェノールノボラック樹脂に比べ、熱時の低弾性率化、基材との高密着性、低吸水性などの長を有し、半田浸漬時の熱応力の低減とパッケージクラック発生の防止に効果的である。

【0011】

【化1】

トリフェニルホスフィン等の有機ホスフィン化合物、2-メチルイミダゾール等のイミダゾール化合物等が例示できる。これらの硬化促進剤は単独であっても、また併用であっても差し支えない。(D)成分の溶融シリカ粉末は破砕状、球状のどちらでも使用可能であるが、フィラー含有量を高め、かつエポキシ樹脂組成物の粘度の上昇を抑えるためには球状シリカを主に用いる方が好ましい。更に球状シリカの配合量を高めるためには、球状シリカの粒度分布をより広くするように調整することが望ましい。溶融シリカ粉末の配合量は成形性と半田耐熱性とのバランスから総エポキシ樹脂組成物中に76~94重量%含むことが望ましい。溶融シリカの配合量が76%未満であると、半田耐熱性が不十分であり、一方94重量%を越えると、溶融粘度の低い樹脂を用いても成形

時の流動性が低下してしまう。

【0014】(E)成分のシランカップリング剤としては、具体的にはγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン等が挙げられるが、これに限定するものでなく、またこれらの単独でも併用でも差し支えない。また、(E)成分のシランカップリング剤は、予め(D)成分の溶融シリカ粉末に均一に処理した後加熱処理をしてもよいし、あるいは(A)成分ないし(C)成分に

(D)成分を添加して混合しても差し支えない。また半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、(A)から(E)までの成分以外にも必要に応じて臭素化エポキシ樹脂、三酸化アンチモン等の難燃剤、カーボンブラックに代表される着色剤、天然ワックス及び合成ワックス等の離型剤、シリコンオイル等の低応力添加剤が適宜配合されており、本発明のエポキシ樹脂組成物の製造方法においてもこれらが配合されても何ら差し支えない。

【0015】本発明は、上記半導体封止用エポキシ樹脂組成物の製造方法に関わるものである。上記組成物を成形する際に発生するピンホール・ボイドとエポキシ樹脂組成物の製造方法との相関を詳しく検討した結果、以下に示す知見が得られた。溶融時の粘度が低い樹脂成分と多量の溶融シリカを含有するエポキシ樹脂組成物を加熱混練するためには、混練方法として同方向2軸混練押し出し機を用いるのが最も適している。その他の混練方法として、例えばロールが挙げられるが、エポキシ樹脂組成物の溶融シリカの含有量が多くなるに従ってロールへの巻き付け性が極端に低下し、樹脂成分の溶融さえ不可能である。また、1軸押し出し混練機、または異方向2軸押し出し混練機の場合では、十分な溶融ゾーンが得られないため吐出した材料中に溶融シリカの凝集物が多数認められる。同方向2軸混練押し出し機では、上記混練方法に較べはるかに安定した混練物が得られ、既にこれに関わる製造方法も提案されている(特開平6-226736号公報)。しかしながら、本発明でのエポキシ樹脂組成物、即ち結晶性エポキシ樹脂と高含有量の溶融シリカとを組み合わせた組成物では、ただ単に同方向2軸押し出し混練機を用いただけでは十分な効果が得られないことが判明した。即ち、結晶性エポキシを含む樹脂組成物の同方向2軸混練機による加熱混練に際しては、樹脂組成物温度が結晶性エポキシ樹脂の融点以上、かつ90~140℃の範囲になるように条件を設定し、管理することが必要である。

【0016】この理由として、結晶性エポキシ樹脂は、一度溶融すれば極めて低粘度の液状状態を示すが、一方融点以下の温度では安定な固体状態を示すからである。この点で、例えば従来のオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂の様に広い分子量分布を有する樹脂と異なる。従来の非結晶性エポキシ樹脂では、低分子量成分が

ら順に低温度から溶融をはじめるため、一度溶融した低分子量成分の溶媒効果により高分子量成分も溶融する。一方結晶性エポキシ樹脂は、その分子量がほぼ一定であり、ある温度(融点)になって初めて溶融する。従って、この結晶性エポキシ樹脂を用いたエポキシ樹脂組成物を加熱混練する場合、結晶性エポキシ樹脂の融点以上にエポキシ樹脂組成物が加熱されないでエポキシ樹脂は固形状態のまま他の成分と混合されるに過ぎない。このような条件で混練された樹脂組成物は、ミクロな状態では溶融し残った結晶成分が分散しており、成形時にその成分が溶融する際に急激な体積変化を起こすため、ミクロなボイドが発生する。またこの成分が単独で低粘度成分として流動するためバリが発生する。

【0017】しかしながら、融点が90℃未満の結晶性エポキシ樹脂を含む組成物の混練の場合では、樹脂組成物温度が90℃未満では結晶性エポキシ樹脂は溶融するにもかかわらず、硬化剤であるフェノール樹脂の軟化温度の影響、および溶融シリカとの混練均一化の効果の点で十分な混練効果が得られない。また、混練時の樹脂組成物の温度が140℃を越えるとエポキシ樹脂と硬化剤樹脂成分との反応が混練中に進行し、成形時の流動性が著しく低下してしまう。この混練条件を実現するためには通常、2軸スクリーウの形状(2条、または3条のネジ等)、構成(送りまたは練りを効かせるエレメントの組み合わせ)、スクリーウ回転数、エポキシ樹脂組成物の時間当たりの供給速度、混練部分のジャケットの温度の組み合わせで種々設定できるが、最も重要な点は混練された樹脂組成物の温度で混練状態を管理することである。混練物の温度については、混練され、同方向2軸押し出し混練機から吐出されたエポキシ樹脂組成物の温度を直接測定するのが最も適している。混練条件について更に検討を続けたところ、同方向2軸押し出し混練機の系内を減圧に保つことにより極めて大きな二つの効果が得られた。その第一は驚くべきことに、同じ混練条件下でも系内を減圧にすることで混練されたエポキシ樹脂組成物の温度が常圧での混練に比較し、20~50℃上昇することである。この理由は推測ではあるが、一つには混練物中に含まれる空気が減圧により除去されるため樹脂組成物の熱伝導率が向上し、同じ熱エネルギーが与えられても効率的に樹脂組成物の温度が上昇すること、また、第二に樹脂組成物中に含まれる水分や有機揮発成分が減圧により除去されるためと考えられる。

【0018】この現象の最大の利点は、樹脂組成物を必要とする温度範囲に加熱するにあたり、ジャケットを加熱して外部から熱を加えることが必ずしも必要でないことである。ジャケットからの加熱では混練機内の周辺部分のみが熱エネルギーを受け易いため温度が不均一になり、かつスクリーウから遠い外周部分の混練効果が低い。そのためバレル外周部の混練物は内部に比べ、より熱エネルギーを受け易い。このため、混練物の一部に反応の進行

した、更にはゲル化した粒子が含まれることになり、成形時の不良の原因となる。一方減圧条件下での混練ではジャケットは、冷却ないし低温での加熱で十分であり、樹脂組成物の熱履歴ははるかに安定し、特性が均一な混練物を得ることができる。

【0019】減圧下での混練の第二の効果は、樹脂組成物の成形時に発生するボイドの大きな低減効果である。この理由としては、一つは減圧条件により樹脂組成物中の水分、有機揮発成分が効率的に除去できるため、成形時にボイドの原因となる揮発成分が発生しないことによる。二つめの理由は多量の熔融シリカと低熔融粘度の樹脂成分とを混練する際に生じる空气の巻き込みを防止できたり、または巻き込まれた気泡の除去ができることである。巻き込みの空气は単に物理的に攪拌によって生ずるのみでなく、結晶性エポキシ樹脂が熔融する際に急激に液状物となるときの体積変化により生ずる気泡も含まれていると考えられる。これは減圧をしない条件下では*

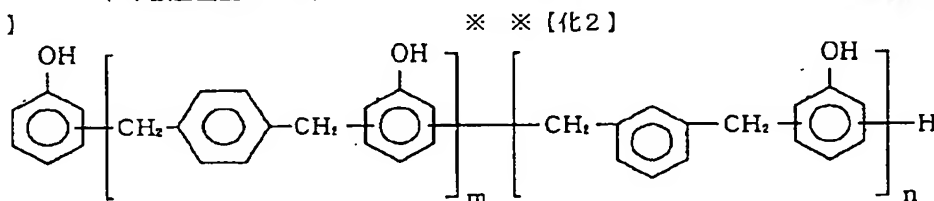
* 結晶性エポキシ樹脂を用いた樹脂組成物の方が結晶性でないエポキシ樹脂による組成物よりも成形時にボイドの発生率が多いが、減圧下ではいずれの樹脂による組成物でも成形時にボイドが発生しないことから推定される。更に、混練後の樹脂組成物の内部を顕微鏡観察すると、減圧しないで混練した場合には内部に多数の気泡やマイクロボイドが認められるのに対し、減圧下混練した場合は気泡、マイクロボイドが極めて緻密な状態となっていることが判る。混練の際の減圧度は少なくとも250 mmHg以下、好ましくは100 mmHg以下が必要である。250 mmHgを越える減圧度では、樹脂組成物の混練時の温度上昇が十分でなく、また成形時のボイドの低減効果も低いいため、不十分な効果しか得られていない。

【0020】以下、本発明を実施例で具体的に説明する。

実施例1

3, 3', 5, 5' -テトラメチルピフェノールジグリシジルエーテル (融点 103°C、エポキシ基当量195) 4. 2重量部
式(2)で示されるフェノール樹脂硬化剤 (150°Cの熔融粘度3. 3ポイズ、水酸基当量175) 4. 3重量部

【0021】



(2)

(式中、重量比で $m/n = 3/1$)

★ ★ 【0022】

トリフェニルホスフィン	0. 2重量部
熔融シリカ粉末	86 重量部
γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン	0. 5重量部
三酸化アンチモン	1 重量部
臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂	1 重量部
カルナバワックス	0. 5重量部
カーボンブラック	0. 3重量部

上記の各成分をミキサーにより混合した後、同方向2軸押し出し混練機を用いて加熱混練を行った。この混練機は $L/D = 20$ 、混練スクリューは3条ねじで、エレメントの練り/送りの比は2. 5/7. 5、スクリュー回転数は300 rpm、ジャケットは水により冷却し、また真空ポンプにより80 mmHgに系内を減圧にした条件下で加熱混練を行った。混練され吐出口から押し出された樹脂組成物の温度を温度計により測定したところ、110°Cであった。混練された樹脂組成物をシーティングロールで2 mm厚のシート状にし、更に冷却後粉碎して封止材料とした。特性を表2に示す。

40 【0023】実施例2~4、比較例1~5

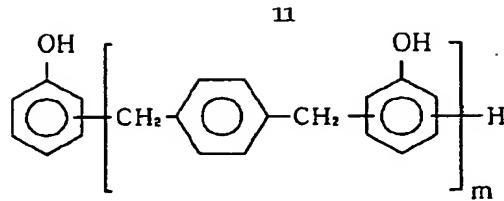
実施例1のエポキシ樹脂組成物を用いて、表2に示す混練条件で混練を行い封止材料を得た。特性を表2に示す。

実施例5、比較例6~9

表1に示すエポキシ樹脂組成物を用いて、表3に示す混練条件で混練を行い封止材料を得た。特性を表3に示す。式(3)、式(4)のフェノール樹脂の構造を下記に示す。

【0024】

50 【化3】



【0025】上記実施例および比較例で得られた封止材料で以下の評価を実施した。

スパイラルフロー：EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用の金型を用いて、金型温度175℃、注入圧力70kg/cm²、硬化時間2分で測定した。

バリ：ボイド評価に用いた成形品パッケージに発生したバリの長さを測定した。

ボイド：各成形材料を用いて80pQFPパッケージ（パッケージサイズは14×20mm、厚み

表1

	実施例		比較例		
	5	6	7	8	9
*2	4.5	10.4	6.4		
オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂*3				8.0	8.0
式(3)のフェノール樹脂*4	4.0	10.1			
式(4)のフェノール樹脂*5			6.1		
フェノールノボラック樹脂*6				4.5	4.5
トリフェニルホスフィン	0.2	0.3	0.2	0.2	0.2
溶融シリカ粉末	86	74	82	82	82
γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン	0.5				
三酸化アンチモン	1				
臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂	1				
カルナバワックス	0.5				
カーボンブラック	0.3				

*2:3,3',5,5'-テトラメチルビスフェノールFジグリシジルエーテル、融点80℃、エポキシ基当量202、*3:軟化点65℃、エポキシ基当量200、

*4:150℃での溶融粘度2.9ポイズ、水酸基当量172、

*5:150℃での溶融粘度7.1ポイズ、水酸基当量178、

*6:150℃での溶融粘度1.7ポイズ、水酸基当量104

【0027】

※ ※【表2】

表2

	実施例				比較例				
	1	2	3	4	1	2	3	4	5
同方向2軸押し出し									
エレメント線り/送り比	2.5/7.5	3.5/6.5	2.5/7.5	2.0/8.0	2.5/7.5	2.5/7.5	3.5/6.5	2.0/8.0	
スクリー回転数 (rpm)	300	300	100	200	200	300	300	100	
ジャケット温度 (℃)	水冷	水冷	水冷	60	120	120	水冷	水冷	
減圧度 (mmHg)	80	30	80	80	80	常圧	350	200	
ロール混練									
高温/低温 ロール温度 (℃)									95/60
吐出物温度 (℃)	115	125	110	120	150	115	105	70	*1
スパイラルフロー (cm)	91	87	95	85	50	76	96	80	
バリ (mm)	0.3	0.1	0.2	0.1	0.1	0.2	0.3	2.7	
ボイド (個数/パッケージ)	0	0	0	0	0	24	13	29	
半田クラック数	0/10	0/10	0/10	0/10	3/10	0/10	0/10	8/10	

*1:混練不可

*1.5mm、チップサイズは9×9mm)を175℃の金型温度、75kg/cm²の圧力で2分間成形し、さらに175℃で8時間の後硬化を行った。この成形品パッケージを超音波探傷装置を用いて観察し、0.1mmφ以上の内部のボイドの数を(個数/パッケージ)で表現した。

半田耐熱：ボイド評価に用いた成形品パッケージを85℃、85%RHの環境下で168時間放置し、その後260℃の半田槽に10秒間浸漬した。顕微鏡でパッケージを観察し、外部クラック数を半田クラック数(クラック発生パッケージ数/全パッケージ数)で表現した。

【0026】

【表1】

【0028】

* * 【表3】

表3

	実施例	比較例			
	5	6	7	8	9
同方向2軸押し出し					
エレメント送り/送り比	2.5/7.5	2.5/7.5	2.5/7.5	2.5/7.5	
スクリー回転数 (rpm)	300	300	300	300	
ジャケット温度 (°C)	水冷	水冷	水冷	水冷	
減圧度 (mmHg)	80	80	80	80	
ロール混練					
高温/低温 ロール温度 (°C)					90/30
吐出物温度 (°C)	110	95	130	125	
スパイラルフロー (cm)	97	133	38	63	59
バリ (mm)	0.2	0.4	0.1	0.2	0.2
ボイド (個数/パッケージ)	0	0	0	0	4
半田クラック数	0/10	8/10	4/10	10/10	10/10

【0029】

【発明の効果】本発明の製造方法により、加熱混練工程で発生する空気の巻き込みや、混練時及び成形時に起こる結晶性樹脂の熔融過程で生じる気泡を樹脂組成物中か

ら効率的に取り除くことでボイド発生率を極端に低減させ、かつ半田耐熱性に優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を得ることができる。